

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2003年12月4日 (04.12.2003)

PCT

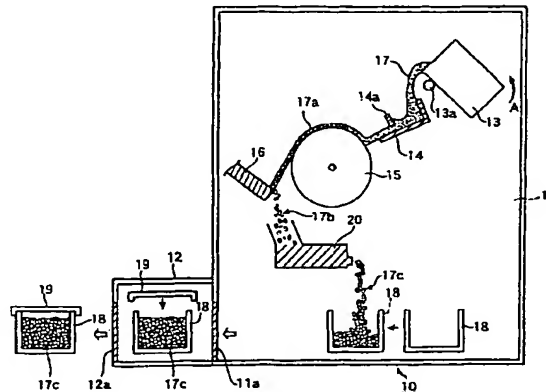
(10) 国際公開番号  
WO 03/100103 A1

- (51) 国際特許分類<sup>7</sup>: C21D 1/00, 0013 兵庫県神戸市東灘区深江北町4丁目14番34号 Ilyogo (JP).  
B22D 11/06, 11/00, 27/20, B22F 9/04
- (21) 国際出願番号: PCT/JP03/06740 (72) 発明者; および  
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 山本 和彦 (YAMAMOTO, Kazuhiko) [JP/JP]; 〒658-0013 兵庫県神戸市東灘区深江北町4丁目14番34号 株式会社三徳内 Hyogo (JP). 芝本 孝紀 (SHIBAMOTO, Takayuki) [JP/JP]; 〒658-0013 兵庫県神戸市東灘区深江北町4丁目14番34号 株式会社三徳内 Hyogo (JP).
- (22) 国際出願日: 2003年5月29日 (29.05.2003)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願2002-155121 2002年5月29日 (29.05.2002) JP (74) 代理人: 酒井 一, 外 (SAKAI, Hajime et al.); 〒102-0083 東京都千代田区麹町5丁目7番地 秀和紀尾井町 T B R ビル Tokyo (JP).
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社三徳 (SANTOKU CORPORATION) [JP/JP]; 〒658-

[続葉有]

(54) Title: SYSTEM FOR PRODUCING ALLOY CONTAINING RARE EARTH METAL

(54) 発明の名称: 希土類金属含有合金の製造システム



(57) Abstract: A system for producing an alloy containing a rare earth metal which has a melting furnace for melting a raw alloy material containing a rare earth metal, a solidifying means for continuously cooling and solidifying the resulting alloy melt into a cast alloy piece, an alloy structure controlling means for controlling the alloy crystal structure of the cast alloy piece to a desired state, and a means for cooling the cast alloy piece, all the facilities being capable of operating in an inert gas atmosphere, characterized in that the alloy structure controlling means is equipped with a transfer device having a space for transfer sufficient for the continuous transfer of a cast alloy piece from the solidification means to the cooling means, and the transfer device has a temperature control means for controlling the inside of the space for transfer to a desired temperature. The system allows, in the production of an alloy containing a rare earth metal, the prevention of the oxidation of the alloy, easy control of the heat history of the alloy and the production of an alloy of uniform structure with good efficiency.

(57) 要約: 本発明は、希土類金属含有合金の製造時に、酸化を防ぎ、合金の熱履歴の制御が容易で、且つ効率的に均一組織の合金を得ることが可能な製造システムである。該製造システムは、希土類金属含有合金原料を溶融する溶融炉、合金溶融物を連続的に合金鑄片に冷却固化する固化手段、合金鑄片の合金結晶組織を所望状態に制御する合金

[続葉有]

WO 03/100103 A1



(81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR),  
OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

(84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

結晶組織制御手段、及び合金鑄片の冷却手段を備え、且つこれらを不活性ガス雰囲気下で実施しうるようになしたシステムであって、前記合金結晶組織制御手段が、固化手段から搬出される合金鑄片を冷却手段へ連続的に移動させる移動空間を有する移動装置を備え、該移動装置が、該移動空間内を所望温度に制御する温度調節手段を有する。

## 明細書

## 希土類金属含有合金の製造システム

## 背景技術

本発明は、磁石材料、水素吸蔵合金、2 次電池用負極材料等に利用可能な希土類金属含有合金の製造システムに関する。

## 技術分野

磁石材料、水素吸蔵合金、2 次電池用負極等に利用可能な希土類金属含有合金を製造するにあたり、原材料である合金熔融物を回転ロールで冷却し、薄帯状又は薄片状の合金(以下、合金鑄片と記すことがある)を製造するシステムが従来から知られている。この合金鑄片は、粉碎して各種用途に利用される。

通常、このような製造システムは、合金製造時における合金の酸化を防止するために、合金熔融物を回転ロールに供給する時点から、冷却固化後、回転ロールから合金が剥離するまでの工程を不活性ガス雰囲気下で行なえるように構成している。前記回転ロールで冷却され、剥離された直後の合金鑄片は、常温まで冷却されているわけではなく、通常数百度の温度を有している。そのような高温の合金鑄片は、大気中に暴露されると一瞬にして酸化され、時には燃焼する危険性がある。そのため、高温の合金鑄片は、不活性ガス雰囲気の気密性容器に入れられて常温になるまで、通常 24 時間程度保管されたり、ガス冷却等により急速に常温まで冷却されたりしている(特許第 3201944 号公報)。

ところで、希土類金属含有合金を利用する分野においては、その最終製品への性能要求が、例えば、エレクトロニクス分野等の急激な進歩に伴い高くなっており、より高性能な物性を示す希土類金属含有合金の開発が望まれている。特に、合金結晶組織を制御することがそのような性能の向上に繋がる。

一般に合金結晶組織は、合金製造時における合金鑄片の熱履歴に左右される。合金結晶組織を調整するために、鑄造後の合金鑄片を室温まで急速に強制冷却し、その後、熱処理炉にて所望条件で熱処理する方法が取られている。また、特に磁石材料の分野において、原料の溶解温度、前記回転ロールにおける 1 次冷却速度、回転ロール剥離後の 2 次冷却速度を制御することにより、合金結晶組織を制御する試みがなされている。2 次冷却速度の制御は、回転ロール剥離後の合金鑄片を断熱材により構成された収納容器に回収し、所定時間容器内に保持することにより行なわれている(例えば、特

開平 8-269643 号公報、特許第 3267133 号公報、特開平 10-36949 号公報、特開 2002-266006 号公報)。

前記断熱材により構成された収納容器により合金鑄片の熱履歴を制御する方法では、鑄造開始直後に固化された合金鑄片の多くは、収納容器と直接接触することにより熱伝導を行い、鑄造が進むにつれ、収納容器内で合金鑄片が積み重なり、合金鑄片同士の接触による熱伝導が行なわれるようになるため、各合金鑄片の熱履歴が不均一となる。特に工業上、一度に数百 kg 以上の合金を鑄造した場合、鑄造開始から終了までに数分～数十分かかり、収納容器からの合金鑄片の回収は一度に行われることから容器下部と容器上部の鑄片では、収納容器中での保持時間が大きく異なる。そのため同一製造ロット内での合金鑄片の熱履歴の違いが大きくなり、目的の合金結晶組織と異なる合金鑄片の割合が多くなる。また、断熱材により構成された収納容器に回収するだけでは、合金鑄片の冷却速度を遅くすることは可能であるが、厳密な冷却速度の制御や、合金鑄片温度を上昇させたり、一定に保持することはできない。

#### 発明の開示

本発明の目的は、希土類金属含有合金の製造時に、合金の酸化を防ぎ、かつ好ましい結晶組織を得るために行う合金の熱履歴の制御を容易に、且つ効率良く、更には製造ロット内での熱履歴のばらつきを少なくすることが可能な希土類金属含有合金の製造システムを提供することにある。

本発明によれば、希土類金属含有合金原料を溶融する溶融炉、溶融炉から出湯する合金溶融物を連続的に合金鑄片に冷却固化する固化手段、合金鑄片の合金結晶組織を所望状態に制御する合金結晶組織制御手段、及び合金鑄片の冷却手段を備え、且つ少なくとも溶融炉、固化手段、合金結晶組織制御手段及び冷却手段が不活性ガス雰囲気下において実施しうるようになした希土類金属含有合金原料の製造システムであって、前記合金結晶組織制御手段が、前記固化手段から搬出される合金鑄片を前記冷却手段へ連続的に移動させうる移動空間を有する移動装置を備え、該移動装置が、該移動空間内を所望温度に制御しうる温度調節手段を有することを特徴とする希土類金属含有合金原料の製造システムが提供される。

#### 図面の簡単な説明

図 1 は、本発明の製造システムの一例を示す概略図である。

図 2 は、本発明の製造システムに用いるロータリーキルン方式の移動装置の一例を

示す概略図である。

図 3 は、本発明の製造システムに用いる容器状冷却器の一例を示す概略図である。

図 4 は、本発明の製造システムに用いる合金結晶組織制御手段と冷却手段とを一体的に有する装置の一例を示す概略図である。

図 5 は、本発明の製造システムに用いる合金結晶組織制御手段と冷却手段とを一体的に有する装置の他の例を示す概略図である。

図 6 は、実施例 1 及び比較例 1 で調製したジェットミル粉碎粉の粒度分布を示すグラフである。

#### 発明の好ましい実施の態様

以下、本発明を更に詳細に説明する。

本発明の製造システムは、溶融炉、固化手段、合金結晶組織制御手段及び冷却手段を備え、少なくともこれらの手段を不活性ガス雰囲気下に保持しうるものである。

前記溶融炉としては、坩堝等を用いた通常の加熱容器に、例えば、所定軸において前記加熱容器が傾倒し、内部の合金熔融物を流出させることができる傾倒手段を有する溶融炉が使用できる。前記溶融炉は、合金熔融物を一定流量で流出させうることが好ましい。

前記固化手段は、合金熔融物を連続的に薄帯状や薄片状等の形状に固化させうるものであって、例えば、双ロール、単ロール等のロール冷却固化装置、回転円盤等を用いたディスク冷却固化装置、その他公知の冷却固化装置を有する冷却固化装置を用いることができる。

前記固化手段は、タンディッシュ等を備えることが好ましい。このタンディッシュとしては、溶融炉からの合金熔融物が流通するための底面部と、この底面部の両側からの合金熔融物の流出を防止する側面部とを備える通常のタンディッシュを用いることができる他、溶融炉から流出してくる合金熔融物を一時的に貯湯するように流速を遅延し、合金熔融物を冷却固化装置に略均一流量で供給し得る構造としたタンディッシュを用いることもできる。このような構造のタンディッシュとしては、前記底面部に、例えば複数の合金熔融物流通通路を設けた堰板を設置した構造等を備えるタンディッシュが挙げられる。

前記固化手段は、前記冷却固化装置で得られた固化物を更に破碎する破碎部を備えていても良い。該破碎部は、前記固化物を 1cm 角程度の薄片に破碎できるものであれ

ば特に限定されず、前記冷却固化装置からの排出速度を利用する衝撃破碎板やフェザーミル等が挙げられる。

前記衝撃破碎板は、冷却固化装置で冷却された固化物が、排出される勢いで衝突しうる位置に設けることができる。この衝撃破碎板は、例えば、金属板、セラミックス構造体等で形成された硬質な板状物であれば良い。

前記合金結晶組織制御手段は、前記固化手段から搬出される合金鑄片を後述する冷却手段まで連続的に移動させることができ、且つ該移動中に合金鑄片の熱履歴を制御しうる装置であって、前記合金鑄片を移動させうる移動空間を有する移動装置を備え、例えば、合金鑄片の冷却速度を遅くする、合金鑄片の温度を一定にする、合金鑄片の温度を上昇させる又はこれらを組合わせた制御を可能にするために、前記移動空間内を所望温度に制御しうる温度調節手段を有しておれば特に限定されない。この際、合金鑄塊の熱履歴の制御は、前記移動空間内の温度と移動速度とを制御することにより達成することができる。

前記移動装置としては、例えば、前記移動空間を形成する、内壁面に所定角度のらせん状に連なるフィンを有する回転可能な管(A)を備え、該管(A)が、前記温度調節手段としての保温層及び加熱部の少なくとも一方を有する装置、具体的には、管内に合金鑄片を供給して回転させることにより、合金鑄片が所定速度で進行するロータリーキルン方式等の外熱式電気炉を有する装置等が挙げられる。

前記移動装置は、例えば、前記管(A)を複数連結した連結管からなり、該管(A)の各々が、管(A)内の温度を各独立に制御しうるように前記温度調節手段を有する装置であっても、また、複数の前記管(A)が同軸的に配置された多重管からなり、該各管(A)が、管(A)内の温度を各独立に制御しうるように前記温度調節手段を有する装置であっても良い。このような装置の場合、複数の管(A)毎に異なる条件の温度調節が可能となる。また、多重管を有する場合、装置をコンパクト化することができる。

また、前記移動装置として、トンネル内を所定温度に制御しうるトンネル炉形式の装置を用いることもできる。トンネル炉形式の装置を用いて合金鑄片を移送するには、トンネル内にベルトコンベアーや振動板を設けて行うことができる。トンネル炉形式の場合、温度調節の均一性を確保するには、例えば、トンネル内に略一定量の合金鑄片が供給されるように、入口に供給量を制御するガイド等を設けることが好ましい。

前記冷却手段は、前記合金結晶組織制御手段から搬送される熱履歴が制御された合

金鑄片を収納し、不活性ガス雰囲気下で常温まで冷却しうる冷却装置であれば特に限定されない。生産効率を考慮すると、水、冷却ガス等の冷媒を利用して比較的短時間、通常 1 時間以内、好ましくは 30 分間以内で常温まで冷却しうる冷却装置が好ましい。

前記冷却手段としては、例えば、回転可能な管であり、管壁内部又は管壁外側に、冷媒が流通する冷却機構を備えた管状冷却器等が挙げられる。該管状冷却器の内壁には、管の一端から他端に対して回転軸と略水平の多数のフィンを設け、合金鑄片が混合され、一様に容器内壁に接するようにすることが好ましい。

前記管状冷却器は、前記合金結晶組織制御手段における多重管の外側に同軸的に設けることにより、合金結晶組織制御手段と冷却手段とを一体に形成し、製造システムをコンパクト化することもできる。また、該管状冷却器は、冷却時には水平に保持され、冷却終了後、合金鑄片を管状冷却器外へ搬出するために、回転軸がある程度傾動可能にすることもできる。

前記冷却手段の他の例として、前記合金結晶組織制御手段から搬送される合金鑄片を収納しうる容器状冷却器が挙げられる。前記容器状冷却器としては、前記合金結晶制御手段から搬送される合金鑄片を収納する容器と、該容器を構成する壁の中空構造の内部に冷媒を流通させる冷媒供給装置を備える冷却器等が挙げられる。

前記冷却手段は、上述の冷却器に限定されるものではなく、例えば、冷却ガス(不活性ガス)を直接合金鑄片に供給して冷却する装置、強制冷却手段を備えていない自然冷却しうる装置であっても良い。

本発明の製造システムにおいては、前記冷却手段を設けることにより、合金鑄片が常温まで冷却されるので、該合金鑄片を製造システムの外へ搬出する際に、実質的に連続して合金鑄片を小わけ包装することができ、効率が良い。また、該合金鑄片を製造システムの外へ搬出した後、更に粉碎工程等を行う場合であっても、合金鑄片の過度の酸化を生じさせることなく該粉碎工程等へ移行することができる。

本発明の製造システムは、前述の熔融炉、固化手段、合金結晶制御手段及び冷却手段を少なくとも備えており、且つこれらが不活性ガス雰囲気下に保持しうるものであれば良い。例えば、これら全てが 1 つの不活性ガス雰囲気下に保持しうるチャンバー内に設けられていても良いし、各手段がそれぞれ別個のチャンバーに收容され、各々不活性ガス雰囲気下に保持しうるように構成されていても良い。このようなチャンバーは、不活性ガス雰囲気下に保持するように気密にしたものであって、不活性ガス導入・

排出可能な装置を具備したものであればよい。またチャンバーには、内部を減圧する公知の減圧装置を設けることが好ましい。

本発明の製造システムにおいては、上記各チャンバーの他に、冷却手段を経た合金鑄片をシステム外へ搬出する出口に、更に他のチャンバーを設けることもできる。該他のチャンバーには、前記出口を連通・遮断しうる連通・遮断手段と、チャンバー内部を不活性ガス雰囲気及び減圧下に保持しうる装置を設けることができる。

前記他のチャンバーを設けることにより、本発明の製造システム内に大気を導入することなく、得られた合金鑄片をシステム外へ搬出することができる。

本発明の製造システムを用いて、例えば以下のように希土類金属含有合金原料の製造を行うことができる。

まず、溶融炉にて希土類金属含有合金原料を溶融する。希土類金属含有合金原料は、用途に応じて公知の組成に基づいて適宜選択することができる。合金原料は、各種金属の混合物であっても、また母合金であっても良い。溶融条件は公知の条件に基づいて合金組成等に応じて適宜選択することができる。

次いで、固化手段により溶融炉から出湯する合金溶融物を連続的に合金鑄片に冷却固化する。例えば、合金溶融物を薄带状又は薄片状に固化することによって合金鑄片を得るか又は合金溶融物を薄带状又は薄片状に固化した後、該固化物を破碎することにより合金鑄片を得ることができる。合金溶融物を薄带状又は薄片状にするには、例えば、双ロール、単ロール等のロール冷却固化装置、回転円盤等を用いたディスク冷却固化装置、その他公知の冷却固化装置を用いて実施できる。また、厚さが均一な合金鑄片を得るために、各冷却固化装置には、合金溶融物の流れを制御できるタンディッシュ等を設けることができる。

冷却固化装置による冷却条件は、目的の希土類含有合金に応じて公知の条件等を勘案して適宜選択できる。通常、冷却速度 100～10000℃/秒程度で実施できる。

前記破碎は、例えば、ロール冷却固化装置から剥離してくる合金固化物が、該剥離時の勢いで衝突することにより破碎しうる合金衝突面を有する板状物等を所望箇所に設置することにより行うことができる。

前記冷却固化装置により得られる合金鑄片の表面温度は、通常、700℃以上、好ましくは 800℃以上程度である。合金鑄片の温度は、光温度計、赤外線温度測定器等非接触の温度計等を用いて測定できる。



次いで、合金鑄片を連続的に移動させながら、温度調節することにより、合金鑄片の熱履歴を制御して合金結晶組織を所望の状態にする。このような合金鑄片の熱履歴の制御は、固化手段から搬出された合金鑄片の表面温度が、通常 400℃以下、好ましくは 500℃以下に降温する前に行うことが望ましい。合金鑄片の表面温度が 100℃以下に降温した後に合金結晶組織の制御を行う場合、該制御に要するエネルギーのロスが大きくなる。合金結晶組織の制御は、結晶粒径、結晶の相比、結晶の析出形状等について行うことができる。その温度や時間は、合金組成、合金鑄片の厚さ、目的の結晶組織等によって大きく異なる。400～800℃の温度範囲で 1 秒間～1 時間程度、好ましくは 2 秒間～30 分間程度、更に好ましくは 5 秒間～20 分間の短時間で行うことができる。

次いで、合金鑄片を冷却する。該冷却は、合金鑄片を 200℃以下、好ましくは 100℃以下、さらに好ましくは室温程度まで冷却することにより行うことができる。このような冷却は、冷媒を用いた強制冷却の他に、自然冷却であっても良い。

本発明の製造システムを用いた場合、合金鑄片を常温程度まで強制冷却した後に熱処理工程を行う従来の方法とは異なり、合金結晶組織制御のために要するエネルギーを削減することができ、合金溶湯から連続して合金結晶組織が均一化した合金鑄片を得ることができる。しかも、驚くことに非常に短時間で結晶を均一化することができる。

本発明の製造システムにおいては、熔融、固化、合金結晶組織制御及び冷却すべての工程を不活性ガス雰囲気中で連続的に行うため、常温程度まで冷却された合金鑄片を、酸化の原因となる大気中に一度も暴露せずに得ることができる。

以下に図面を参照して本発明の製造システムの例を具体的に説明するが、本発明のシステムはこれに限定されない。

図 1 は、本発明の希土類金属含有合金を製造するための製造システムを説明する概略図であって、10 は製造システムである。

製造システム 10 は、不活性ガス雰囲気下及び減圧下に行うことができる気密性の第 1 のチャンバー 11 と、第 2 のチャンバー 12 とから構成されるが、第 2 のチャンバー 12 は必要に応じて設けることができるチャンバーである。

第 1 のチャンバー 11 は、希土類金属含有合金原料を熔融する熔融炉 13 と、熔融炉 13 から出湯する合金溶融物 17 を薄带状に冷却固化する回転ロール 15、熔融炉 13 か

らの合金溶融物 17 を回転ロール 15 に誘導するタンディッシュ 14、及び回転ロール 15 から剥離してくる薄帯状の希土類金属含有合金 17a を、衝突することのみにより破碎させる合金破碎板 16 からなる固化手段と、破碎された合金 17b の合金結晶組織を所望の状態に均一化するための合金結晶組織制御装置 20 と、該装置 20 から搬出される合金 17c を収納し、強制冷却する容器状冷却器 18 とを備える。このチャンバー 11 は、第 2 のチャンバー 12 と連通する箇所に、気密性を保持できる開閉自在なシャッター 11a を備える。

溶融炉 13 は、希土類金属含有合金原料を溶融したのち、軸 13a を中心に矢印 A 方向に傾倒して、合金溶融物 17 を略一定量づつタンディッシュ 14 へ流通させうる構造となっている。

タンディッシュ 14 は、合金溶融物 17 が側面から流出するのを防止する側面部を省略した断面図で示しており、溶融炉 13 から流出してくる合金溶融物 17 を整流させて回転ロール 15 に略均一量で供給するための堰板 14a を備えている。

回転ロール 15 は、外周面が銅等の合金溶融物 17 を冷却し得る材料で形成され、一定角速度等で回転可能な駆動装置(図示せず)を備えている。

合金破碎板 16 は、回転ロール 15 から剥離してくる希土類金属含有合金 17a が連続的に衝突しうる位置に設置された金属製の板状物である。

前記合金破碎板 16 により破碎された合金 17b は、合金組成、冷却速度等によっても異なるが、通常、700℃以上の表面温度を有する。そして、この表面温度が 400℃以下にならないような位置に装置 20 を配置する。

装置 20 としては、図 2 に示す、ロータリーキルン方式の温度調節機能を有する合金結晶組織制御装置 20a を用いることができる。該装置 20a は、合金 17b の導入口 21a、合金結晶組織が制御された合金 17c を搬出する出口 21b 及び熱線 22a を配した加熱部 22 を備えた回転可能な合金 17b の移動空間を有する管 21 から構成されている。該管 21 の内面には、管 21 の回転により、導入された合金 17b が出口 21b 側に進行するように、フィン 23 が設けられている。そして、管 21 を所望の速度で回転させることにより、合金 17b を所望速度で出口 21b 方向へ移動させることができる。

装置 20a に導入された合金 17b は、加熱部 22 を適宜作動させることにより所定温度に制御される。また、管 21 の回転速度やフィン 23 の設置角度等を調節することにより、該所定温度において所定時間合金 17b の熱履歴が制御される。このように合金

17a を所定温度で所定時間制御することにより、所望の均一な合金結晶組織を有する合金 17c を短時間に、効率良く調製することができる。

装置 20 の下方には、合金 17c を収納し、強制冷却するための容器状冷却器 18 を備えられる。該冷却器 18 は、例えば、図 3 に示されるように、壁が中空になっており、冷媒搬入口 18x と冷媒搬出口 18y とを備え、該中空構造内に冷媒を流通しうる構造になっている。該容器状冷却器 18 に収納された合金 17c を冷却するには、冷却装置 30 の管 31 及び管 32 を前記冷媒搬入口 18x 及び冷媒搬出口 18y にそれぞれ接続し、前記中空構造内に冷却ガス等の冷媒を流通させることにより行うことができる。

容器状冷却器 18 により冷却された合金 17c は、冷却器 18 から冷却装置 30 を外した後、シャッター 11a の方向に移動され、次の空状態の容器状冷却器 18 が合金 17c を収納、冷却するために装置 20 の下方に配される。

シャッター 11a の方向に移動した、冷却された合金 17c を収納した容器状冷却器 18 は、次に、第 2 のチャンバー 12 内に移動する。チャンバー 12 は、開閉自在なシャッター 12a を備え、且つチャンバー 12 内を不活性ガス雰囲気下にしうるガス導入・排出管及び減圧装置(図示せず)を備える。

冷却された合金 17c を収納した容器状冷却器 18 をチャンバー 12 内に移動させるには、まず、チャンバー 12 内を不活性ガス雰囲気としてチャンバー 11 のシャッター 11a を開放し、容器状冷却器 18 をチャンバー 12 内に移動した後、シャッター 11a を閉じる。次いで、チャンバー 12 内を真空引きし、容器状冷却器 18 内を密閉状態とするために蓋 19 により蓋をした後、シャッター 12a を開放し、気密状態の容器状冷却器 18 をチャンバー 12 の外部へ搬出する。このようなチャンバー 12 を設けることにより、チャンバー 11 を常に不活性ガス雰囲気状態に維持しながら全ての製造工程を実施することが可能になる。

次に、図 4 及び図 5 を参照して、図 2 に示す合金結晶組織制御装置 20a の代わりに、合金結晶組織制御手段と冷却手段とを一体とした装置 40 又は装置 50 を用いる場合の製造システムについて説明する。

装置 40 及び 50 は、図 1 に示す装置 20 と同様に、合金破碎板 16 により破碎された合金 17b の表面温度が前記所定温度以下にならないような位置に設けることができる。

装置(40, 50)は、合金 17b の導入口(41a, 51a)、合金結晶組織が制御された合金 17c

を搬出する出口(41b, 51b)及び熱線(42a, 52a)を配した加熱部(42, 52)を備えた回転可能であり、且つ合金 17b を連続的に移動せうる移動空間を有する管(41, 51-1, 51-2)を備え、更に、管(41, 51-2)の外側には、同軸的に回転可能な管状冷却器(45, 55)を備える。要するに、装置 40 は、合金 17b の合金結晶組織制御装置として単管 41 を備え、装置 50 は、合金 17b の合金結晶組織制御装置として二重管(51-1, 51-2)を備える。二重管(51-1, 51-2)を備える装置 50 は、例えば、合金 17b の合金結晶組織制御時間を長く取る必要がある場合や設置スペースを短くする際等に利用できる。

管(41, 51-1, 51-2)の内面には、管(41, 51-1, 51-2)の回転により、導入された合金 17b が出口(41b, 51b)側に進行するように、フィン(43, 53)が設けられている。ここで、装置 50 において、導入された合金 17b が出口 51b 側に進行するとは、管(51-1, 51-2)内の合金 17b が、管の回転により矢印方向に移動し、最終的に出口 51b に進行することを意味する。

管(41, 51-1, 51-2)に導入された合金 17b は、加熱部(42, 52)を適宜作動させることにより所定温度に保持される。また、管(41, 51-1, 51-2)の回転速度やフィン(43, 53)の設置角度を調節することにより、該所定温度において所定時間制御される。このように合金 17a を所定温度で所定時間制御することにより、所望の結晶組織を有する均一な合金結晶を有する合金 17c を短時間に、効率良く調製することができる。

管状冷却器(45, 55)は、合金結晶が制御された合金 17c を搬出する出口(46, 56)及び冷媒を循環させることが可能な冷媒循環管(47a, 57a)を配した冷却部(47, 57)を備えた回転可能な管からなる。また、管状冷却器(45, 55)は、強制冷却した合金 17c を出口(46, 56)から管外に搬出するために、搬出時に回転軸が出口側に傾斜するように構成されている。更に、管状冷却器(45, 55)内の出口側には、合金 17c を管外に搬出するために、冷却時の回転によっては合金 17c に対して何等作用せず、回転軸を傾斜させ、冷却時とは逆回転させることにより、合金 17c を出口(46, 56)に誘導することができるフィン(48, 58)が設けられている。

管状冷却器(45, 55)の内面には、合金 17c を管状冷却器(45, 55)の内面全体に均一に接触させることを可能にするフィン(図示せず)を設けることもできる。

装置 20a の代わりに前記装置(40, 50)を用いることにより、合金結晶を所望の組織に制御しながら、合金の強制冷却を行うことができる他、製造システムのスペース効率を向上させることができる。従って、図 1 における容器状冷却器 18 の代わりに、

通常の収納容器を用いることができ、該収納容器に合金 17c を収納する際の雰囲気は、必ずしも不活性ガス雰囲気とする必要はなく、不活性ガス雰囲気にしうるチャンバー 11 内には、熔融炉 13 から装置(40 又は 50)までを収容すれば良い場合もある。この際、各装置は必ずしも 1 つのチャンバー 11 内に収容される必要はなく、個々に不活性ガス雰囲気にしうるチャンバー内に収容し、各装置を連結管等で接続することもできる。また、装置(40、50)は、例えば、合金鑄片 17b を導入する導入口(41a、51a)までの導入連絡管内に遮蔽弁(図示せず)を設け、該遮蔽弁で遮蔽して装置(40、50)内を不活性ガス雰囲気にしうる構成とすることもできる。この際、装置(40、50)は、不活性ガス雰囲気にしうるチャンバー内に収容する必要はない。

更に、装置 50 を用いる場合、管 51-1 内と管 51-2 内との保持温度は同一温度である必要はなく、異なる温度で制御しても良い。

#### 実施例

以下、本発明を実施例により更に詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されない。

##### 実施例 1

上述の図 1 に示す製造システム 10 において、装置 20 の代わりに図 5 に示す装置 50 を用い、容器状冷却器 18 の代わりに冷却装置を備えていない容器を用いて以下の方法により合金鑄片を調製した。

ネオジム 32.8 質量%、硼素 1.02 質量%、アルミニウム 0.28 質量%、残部鉄で、合計重量が 500kg となるようにそれぞれの原料を秤量し、真空溶解炉 13 で溶解した後、1430℃で出湯し、水冷銅ロール 17a 上にタンディッシュ 14 を通して供給し連続的に凝固させる。ロール 17a の表面速度は 1.2m/秒で行った。ロール 17a 上で凝固した合金鑄片の剥離位置における放冷面側の表面温度を赤外線温度測定器で測定したところ 880℃であった。出湯の開始から終了までに要した時間は 20 分であった。該合金鑄片は、合金破砕板 16 に衝突し直径約 50mm 程度の薄片となり装置 50 の導入口 51a へ落下する。この落下した合金鑄片は、表面温度が 750℃以上の状態で、装置 50 の管 51-1 に導入され、750℃で 5 分間保持されるように管 51-1 内を移動し、次に、管 51-2 に導入され、600℃で 5 分間保持されるように管 51-2 内を移動し、管 55 内に移動する。管 55 内は水冷されており移動した合金鑄片は管 55 内で室温まで強制急冷し、容器に収容する。

次いで、得られた合金鋳片を磁石製造プロセスとして一般的に知られる水素化処理を行い脱水素処理の後、粉碎ガス圧  $7.0\text{kg}/\text{cm}^2$ 、原料供給スピード  $4\text{kg}/\text{hr}$  で小型ジェットミルにより粉碎を行った。鑄造開始直後、中盤、終了直前の合金鋳片の R-rich 相間隔の平均値、鑄造ロットから無作為にサンプリングした合金鋳片の R-rich 相間隔の平均値、標準偏差、ジェットミル粉碎粉の D50、ジェットミル粉碎粉の粒度分布に Rosin-Rammler 分布を適応した時の均等数を表 1 に示す。ジェットミル粉碎粉の粒度分布を図 6 に示す。

ここで、R-rich 相間隔は次のようにして求めた。合金鋳片の断面組織写真を光学顕微鏡により撮影し、厚み方向断面中央部において、鋳片の面部分に略平行な線分を等間隔に分割し、その単位幅を縦断する R-rich 相の数を測定する。この測定区間の長さを R-rich 相の数で割った値を R-rich 相間隔とする。このようにして R-rich 相間隔を 100 単位以上測定する。本件では 200 倍の断面組織写真の断面中央部において  $1\text{cm}$  ( $50\mu\text{m}$ ) 間隔の R-rich の数を 1 枚の写真につき 5 点測定する。これを 20 枚の鋳片について行い、計 100 点のデータを採取した。

また、ジェットミル粉碎粉の均等数は次のようにして求めた。合金鋳片を水素化粉碎して、ジェットミルにより平均粒度  $3\sim 7\mu\text{m}$  になるよう粉碎を行う。得られた粉末をレーザー回折式粒度分布測定器を用いて合金粉末の粒度分布を測定する。この粒度分布から各粒度(x)に対する粒度積算値( $R(x)$ )を求める。そして各粒度の対数値( $\ln x$ )と粒度積算値の逆数について 2 回対数をとった値( $\ln(\ln(1/R(x)))$ )を算出する。X 軸に  $\ln(x)$ 、Y 軸に ( $\ln(\ln(1/R(x)))$ ) をとりプロットすると直線になり、この直線の傾きが Rosin-Rammler 分布における均等数となる。また、粒度特性数は  $R(x)=0.368$  となる時の x の値である。均等数が多いほど粒度分布はシャープで合金組織のばらつきは小さく、小さいほど粒度分布はブロードで合金組織のばらつきは大きい。

#### 比較例 1

実施例 1 において、ロール剥離後の合金鋳片を装置 50 を用いずに、断熱性の優れた材質により構成された収納容器に回収した。合金鋳片を全量回収後、収納容器中で 10 分間保持させた。収納容器投入直後の鋳片温度は  $750^\circ\text{C}$ 、回収後 3 分で  $705^\circ\text{C}$ 、10 分後の温度は約  $640^\circ\text{C}$  であった。10 分保持後、合金鋳片を水冷容器に投入し、室温まで冷却した。

この合金薄帯を、実施例 1 と同様に水素化処理及び粉碎して粉末化し、得られた粉

末を実施例 1 と同様に測定した。鑄造開始直後、中盤、終了直前の合金鑄片の R-rich 相間隔の平均値、鑄造ロットから無作為にサンプリングした合金鑄片の R-rich 相間隔の平均値、標準偏差、ジェットミル粉碎粉の D50、ジェットミル粉碎粉の粒度分布に Rosin-Rammler 分布を適応した時の均等数を表 1 に示す。ジェットミル粉碎粉の粒度分布を図 6 に示す。

表 1

	R-rich 相間隔( $\mu\text{m}$ )					ジェットミル粉碎 粉末の粒度分布	
	鑄造 直後	中盤	終了 直前	無作為抽出	無作為抽出 標準偏差	D50 ( $\mu\text{m}$ )	均等数
実施例 1	5.27	4.93	5.41	5.18	1.2	5.46	2.22
比較例 1	6.35	5.39	4.68	5.58	2.5	5.89	2.11

## 請求の範囲

1. 希土類金属含有合金原料を熔融する熔融炉、熔融炉から出湯する合金溶融物を連続的に合金鑄片に冷却固化する固化手段、合金鑄片の合金結晶組織を所望状態に制御する合金結晶組織制御手段、及び合金鑄片の冷却手段を備え、且つ少なくとも熔融炉、固化手段、合金結晶組織制御手段及び冷却手段が不活性ガス雰囲気下において実施しうるようになした希土類金属含有合金原料の製造システムであって、

前記合金結晶組織制御手段が、前記固化手段から搬出される合金鑄片を前記冷却手段へ連続的に移動させうる移動空間を有する移動装置を備え、該移動装置が、該移動空間内を所望温度に制御しうる温度調節手段を有することを特徴とする希土類金属含有合金原料の製造システム。

2. 前記移動装置が、前記移動空間を形成する、内壁面に所定角度のらせん状に連なるフィンを有する回転可能な管(A)を備え、該管(A)が、前記温度調節手段としての保温層及び加熱部の少なくとも一方を有することを特徴とする請求の範囲 1 の製造システム。
3. 前記移動装置が、前記管(A)を複数連結した連結管からなり、該管(A)の各々が、管(A)内の温度を各独立に制御しうるように前記温度調節手段を有することを特徴とする請求の範囲 2 の製造システム。
4. 前記移動装置が、複数の前記管(A)が同軸的に配置された多重管からなり、該各管(A)が、管(A)内の温度を各独立に制御しうるように前記温度調節手段を有することを特徴とする請求の範囲 2 の製造システム。
5. 前記冷却手段が、前記合金結晶組織制御手段から搬送される合金鑄片を収納できる容器と、該容器を構成する壁の中空構造の内部に冷媒を流通させうる冷媒供給装置とを備えることを特徴とする請求の範囲 1 の製造システム。
6. 前記冷却手段が、回転可能な管状冷却器からなり、該管状冷却器が、前記多重管の外側に同軸的に設けられていることを特徴とする請求の範囲 4 の製造システム。
7. 前記管状冷却器が、内壁面に複数のフィンを有することを特徴とする請求の範囲 6 の製造システム。
8. 前記管状冷却器が、該管状冷却器を構成する壁の内部に冷媒循環手段を備えることを特徴とする請求の範囲 6 の製造システム。
9. 前記固化手段が、合金溶湯を薄带状又は薄片状に冷却固化する冷却固化装置と、



熔融炉からの合金溶湯を該冷却固化装置に誘導するタンディッシュとを有することを特徴とする請求の範囲 1 の製造システム。

10. 前記固化手段が、前記冷却固化装置で固化した合金を破碎する破碎部を有することを特徴とする請求の範囲 9 の製造システム。

図 1

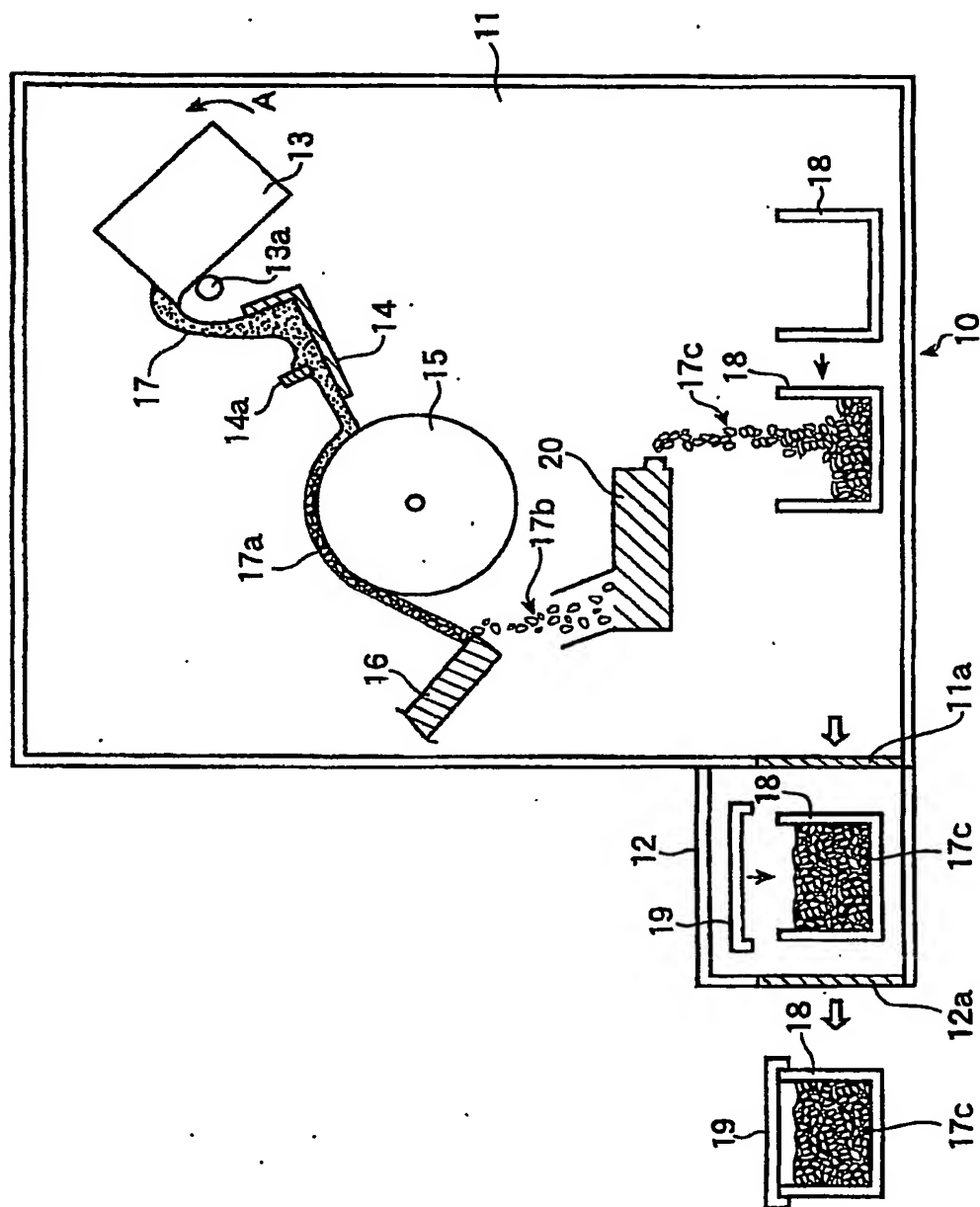


図 2

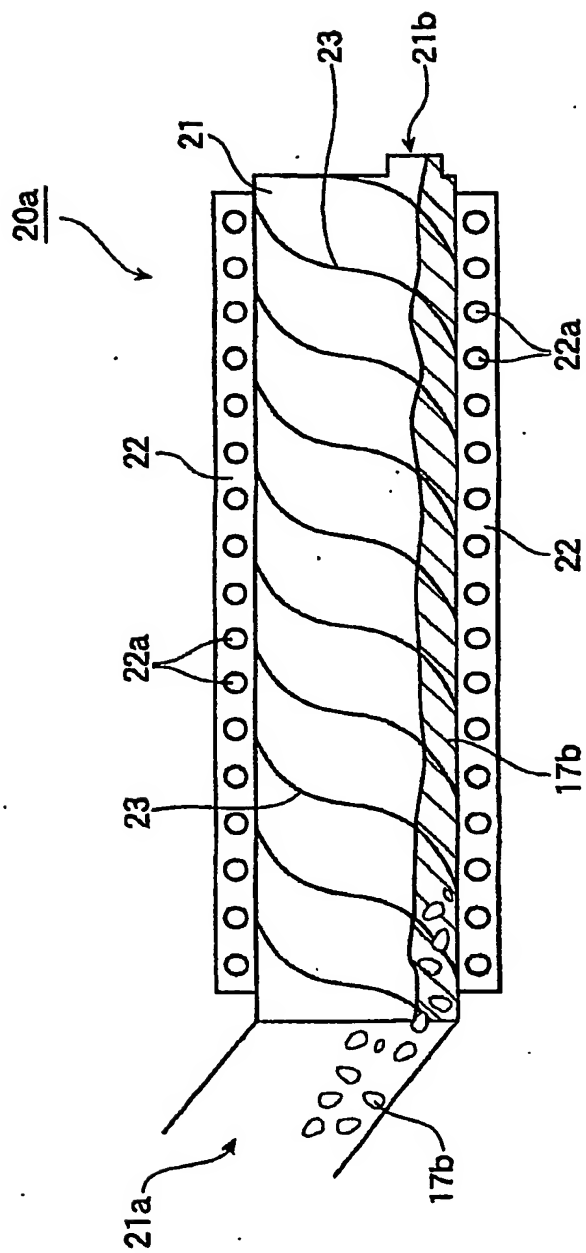
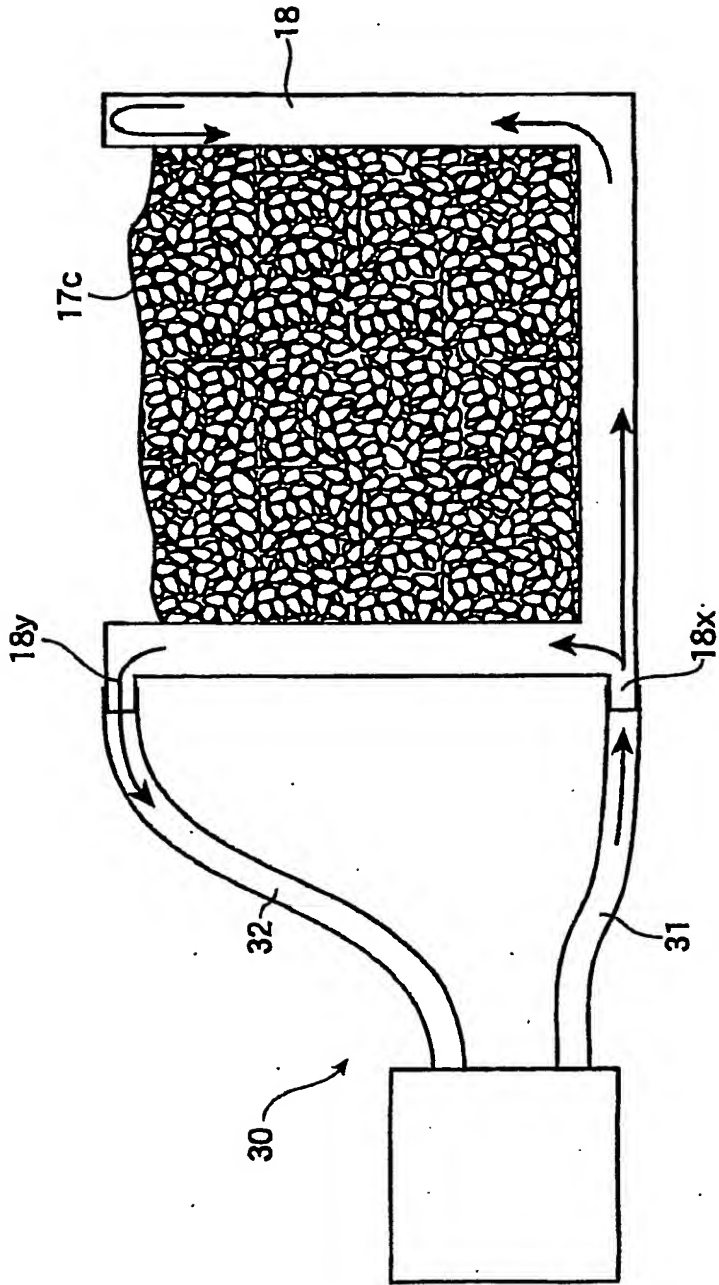


図 3



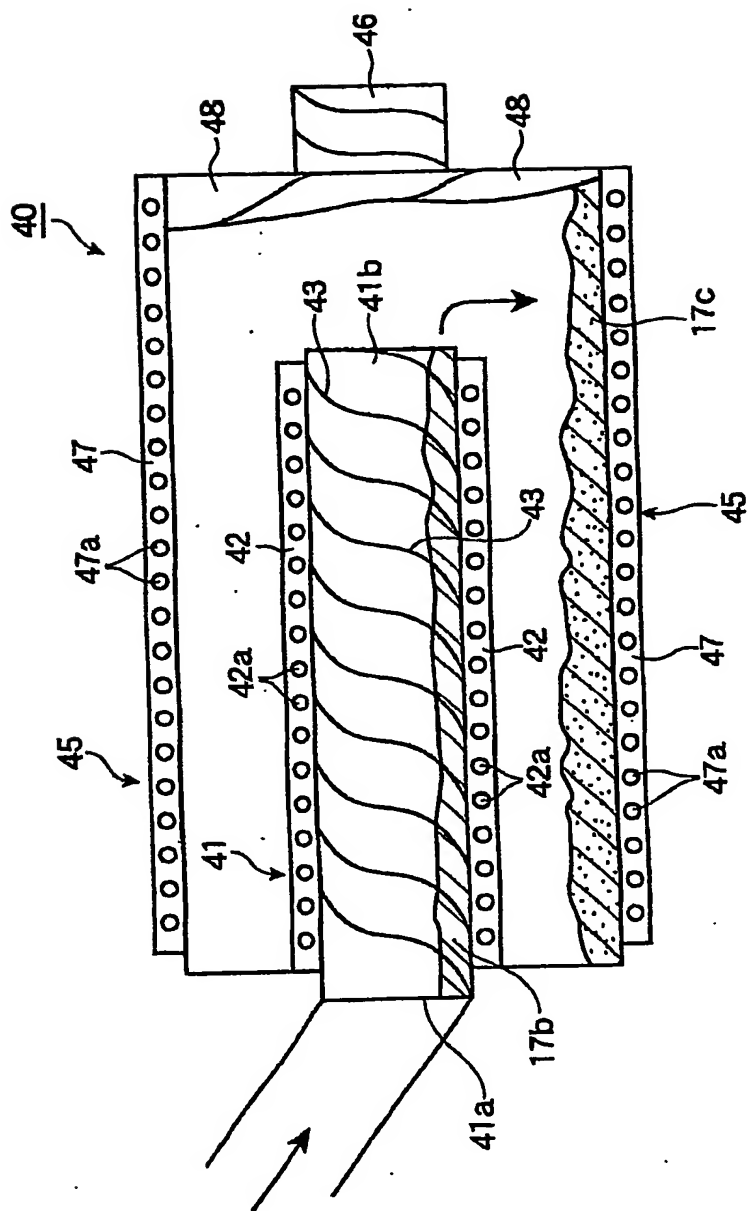
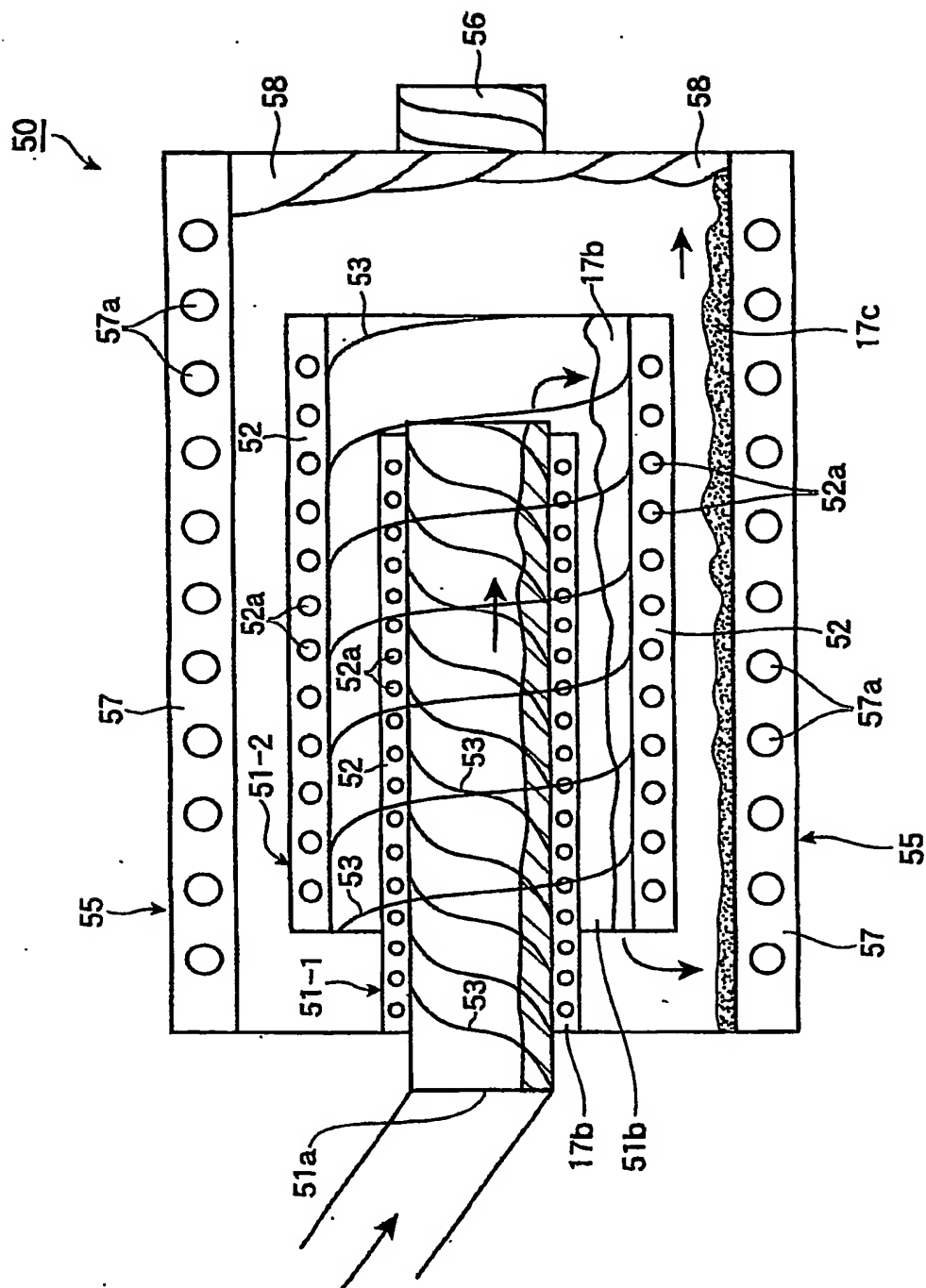
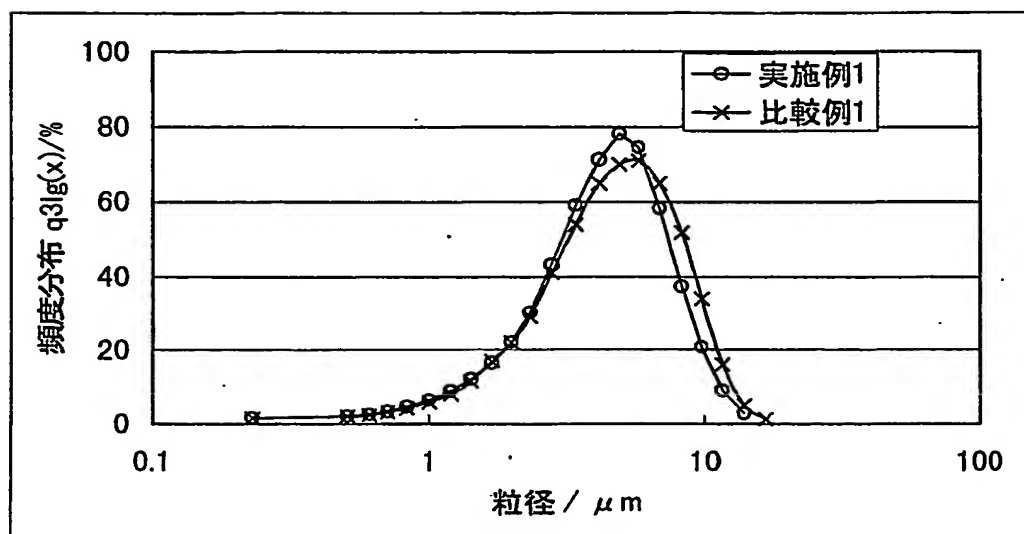


図 5



6/6

図 6



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/06740

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.<sup>7</sup> C21D1/00, B22D11/06, B22D11/00, B22D27/20, B22F9/04

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.<sup>7</sup> C21D1/00, B22D11/06, B22D11/00, B22D27/20, B22F9/04,  
F27B7/08

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2003
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2003	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y A	JP 3201944 B2 (Santoku Corp.), 27 August, 2001 (27.08.01), Full text (Family: none)	1, 2, 5, 9, 10 3, 4, 6-8
Y A	EP 886284 A1 (SHOWA DENKO KABUSHIKI KAISHA), 23 December, 1998 (23.12.98), Full text & EP 801402 A1 & CN 1166677 A & JP 10-36949 A & US 5908513 A1 & US 5963774 A1 & DE 69707185 T	1, 2, 5, 9, 10 3, 4, 6-8
Y A	JP 2000-161859 A (Daido Steel Co., Ltd.), 16 June, 2000 (16.06.00), Par. No. [0006]; Fig. 1 (Family: none)	1, 2, 5, 9, 10 3, 4, 6-8

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search  
06 August, 2003 (06.08.03)

Date of mailing of the international search report  
19 August, 2003 (19.08.03)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/06740

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP 514325 A2 (HILTI AG.), 19 November, 1992 (19.11.92), Full text & FI 922195 A                      & DE 4116215 A & JP 05-147722 A	1-10

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C21D1/00、B22D11/06、B22D11/00、  
B22D27/20、B22F9/04

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C21D1/00、B22D11/06、B22D11/00、  
B22D27/20、B22F9/04、F27B 7/08

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年  
日本国公開実用新案公報 1971-2003年  
日本国登録実用新案公報 1994-2003年  
日本国実用新案登録公報 1996-2003年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y A	JP 3201944 B2 (株式会社三徳) 2001. 08. 27, 全文 (ファミリーなし)	1, 2, 5, 9, 10 3, 4, 6-8
Y A	EP 886284 A1 (SHOWA DENKO KABUSHIKI KAISHA) 1998. 12. 23, 全文 & EP 801402 A1 & CN 1166677 A & JP 10-36949 A & US 5908513 A1	1, 2, 5, 9, 10 3, 4, 6-8

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

06. 08. 03

国際調査報告の発送日

19.08.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)  
郵便番号100-8915  
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

佐藤 陽一

4K

3237

電話番号 03-3581-1101 内線 3435

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
	& US 5963774 A1 & DE 69707185 T	
Y A	JP 2000-161859 A (大同特殊鋼株式会社) 2000. 06. 16, 【0006】, 【図1】 (ファミリーなし)	1, 2, 5, 9, 10 3, 4, 6-8
A	EP 514325 A2 (HILTI AKTIENGESELLSCHAFT) 1992. 11. 19, 全文 & FI 922195 A & DE 4116215 A & JP 05-147722 A	1-10